

KONINKRIJK DER



NEDERLANDEN

Bureau voor de Industriële Eigendom

REC'D 13 AUG 2003

WIPO

PCT



Hierbij wordt verklaard, dat in Nederland op 15 augustus 2002 onder nummer 1021287,

ten name van:

DSM N.V.

te Heerlen

een aanvraag om octrooi werd ingediend voor:

"Werkwijze voor het bereiden van melamine",

en dat de hieraan gehechte stukken overeenstemmen met de oorspronkelijk ingediende stukken.

Rijswijk, 5 augustus 2003

De Directeur van het Bureau voor de Industriële Eigendom,
voor deze,

Mw. M.M. Enhus

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

BEST AVAILABLE COPY

102 1287

B. v.d. I.E.

16 AUG. 2002

UITTREKSEL

- Werkwijze voor het bereiden van melamine, omvattende een eerste mengstap waarin ten minste twee melamine-bevattende stromen, afkomstig uit ten
- 5 minste twee verschillende processen voor de bereiding van melamine, met elkaar in contact gebracht worden, waarbij een mengsel wordt gevormd. In een voorkeursuitvoering bevat ten minste één melamine-bevattende stroom melamine uit een lagedruk gasfaseproces voor de bereiding van melamine en bevat ten minste één
- 10 melamine-bevattende stroom melamine uit een hogedruk vloeistoffaseproces voor de bereiding van melamine.

[Handwritten signature]

WERKWIJZE VOOR HET BEREIDEN VAN MELAMINE

5

De uitvinding heeft betrekking op een werkwijze voor het bereiden van melamine.

Een dergelijke werkwijze is onder de naam Stamicarbon Process bekend uit 'Melamine and Guanamines', par. 4.1.3 van Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Sixth Edition, 2001. In het bekende proces wordt gasvormige melamine uit ureum bereid in een reactor met behulp van een katalysator. Het gasvormige melaminehoudende reactiemengsel wordt gekoeld met een vloeibare waterige fase, waarbij een slurry ontstaat. In een serie vervolgstappen wordt uiteindelijk zuivere melamine in de vorm van kristallen met een zekere

10

15 deeltjesgrootteverdeling, vorm en stortgewicht afgescheiden.

Een ander voorbeeld van een bekende werkwijze voor de bereiding van melamine is het Melamine Chemicals Process, als weergegeven in par. 4.2.1 van bovengenoemde referentie. In dit bekende proces wordt vloeibare melamine uit ureum bereid bij hoge druk (11 – 15 MPa). De vloeibare melamine wordt gescheiden van gasvormige bijproducten en vervolgens in een koeleenheid geïnjecteerd waar koeling met behulp van vloeibare ammoniak plaatsvindt. De hierbij gevormde vaste melamine wordt vervolgens als product geïsoleerd.

20

De bekende processen hebben als nadeel dat het, bij een gegeven procesontwerp, slechts beperkt mogelijk is om genoemde eigenschappen van de melaminekristallen te beïnvloeden.

25

Het is het doel van de uitvinding om genoemd nadeel te verminderen.

Het genoemde doel wordt bereikt doordat de werkwijze een eerste mengstap omvat waarin ten minste twee melamine-bevattende stromen, afkomstig uit ten minste twee verschillende processen voor de bereiding van melamine, met elkaar in contact gebracht worden, waarbij een mengsel wordt gevormd.

30

Het voordeel van de werkwijze volgens de uitvinding is dat een grotere beïnvloeding van eigenschappen van melaminekristallen zoals deeltjesgrootteverdeling, vorm en stortgewicht mogelijk is dan in het bekende proces. Deze eigenschappen zijn o.a. van belang bij de harsbereiding met melaminekristallen als grondstof. Een voorbeeld van een harsbereiding is de bereiding van een melamine-formaldehyde hars, welke een oplosstap omvat waarin formaldehyde en melamine in

35

P-III

water worden opgelost. Door de eigenschappen van de melaminekristallen te beïnvloeden, kan het oplosgedrag en daarmee ook de harsvorming beïnvloed worden.

Zonder de intentie te hebben een theoretische verklaring te geven voor de voordelen van de werkwijze volgens de uitvinding, wordt verondersteld dat

5 verschillen in aard en hoeveelheid van verontreinigingen in de melamine-bevattende stromen, afkomstig uit ten minste twee verschillende processen voor de bereiding van melamine, aanleiding kunnen zijn tot beïnvloeding van de eigenschappen van de uiteindelijke melaminekristallen in de werkwijze volgens de uitvinding. Enkele

10 voorbeelden van verontreinigingen zijn: ammelide, ammeline, cyanuurzuur, ureum, melam en melem. Tevens wordt verondersteld dat verschillen in kristalstructuur van de melamine in genoemde melamine-bevattende stromen aanleiding kunnen zijn tot beïnvloeding van eigenschappen. Daarnaast kunnen andere factoren van invloed zijn.

In de werkwijze volgens de uitvinding worden in de eerste mengstap twee melamine-bevattende stromen met elkaar in contact gebracht. Met een

15 melamine-bevattende stroom wordt een stroom bedoeld die ten minste melamine bevat, maar daarnaast ook andere verbindingen kan bevatten. Voorbeelden van dergelijke andere verbindingen zijn lucht, stikstof, NH_3 , CO_2 en H_2O . De melamine-bevattende stroom kan gasvormig, vloeibaar, vast, of een combinatie daarvan zijn. De melamine-bevattende stroom kan bijvoorbeeld bestaan uit gasvormige of vloeibare

20 melamine, uit een gasmengsel van melamine, NH_3 , CO_2 en eventueel H_2O , uit een melamine-ammoniak gas/vloeistofmengsel, uit melamine welke is opgelost in water, uit een slurry van melaminedeeltjes in een waterige fase, of uit een poederstroom. Met een waterige fase wordt hier bedoeld een vloeibare fase die in hoofdzaak uit water bestaat maar waarin daarnaast ook andere verbindingen zoals verontreinigingen

25 aanwezig kunnen zijn, in oplossing of als deeltjes. De temperatuur en de druk van elk van de melamine-bevattende stromen kunnen over een groot bereik variëren. Indien een melamine-bevattende stroom gasvormige en/of vloeibare melamine bevat zal de temperatuur veelal tussen het melaminesmeltpunt en 450°C liggen, bij een druk gelegen tussen atmosferisch en 30 MPa. Zoals bekend varieert het smeltpunt van

30 melamine in afhankelijkheid van factoren als bijvoorbeeld de druk en eventueel aanwezige ammoniak. Indien een melamine-bevattende stroom een waterige oplossing of een slurry in een waterige fase is zal de temperatuur veelal tussen 0°C en 200°C liggen, bij een druk die ten minste de autogene druk van de stroom is.

Het in contact met elkaar brengen van de melamine-bevattende

35 stromen in de eerste mengstap volgens de uitvinding kan op velerlei, op zich bekende,

wijzen worden uitgevoerd, onder andere afhankelijk van de aard van de te mengen melamine-bevattende stromen zoals hiervoor aangegeven. Voorbeelden van uitvoeringsvormen van de mengstap zijn: een vat of een kolom, al dan niet voorzien van een pakking en/of verdeeld in compartimenten, waarin beide stromen samen
5 komen of twee pijpen die onder een hoek bij elkaar komen, al dan niet met mengelementen.

De ten minste twee melamine-bevattende stromen welke in de eerste mengstap volgens de uitvinding met elkaar in contact worden gebracht zijn afkomstig uit ten minste twee verschillende processen voor de bereiding van melamine.

- 10 Processen zijn verschillend wanneer er een verschil is in ten minste één van de procesbewerkingen om het desbetreffende product in handen te krijgen, of ten minste één verschil in de volgorde van de procesbewerkingen.

Voorbeelden van verschillen in een procesbewerking zijn:

- verschillende procesomstandigheden zoals, temperatuur, druk, samenstelling,
15 en/of
- verschil in de aard of type van de gebruikte apparaten.

Met een verschil in temperatuur wordt bedoeld een temperatuursverschil dat groter is dan 5°C en tevens groter is dan 2% van de laagste temperatuur uitgedrukt in °C.

- 20 Met een verschil in druk wordt bedoeld:

- een drukverschil dat groter is dan 20% van laagste absolute druk voor drukken beneden 1 MPa absoluut, of
- een drukverschil dat groter is dan 10% van de laagste absolute druk voor drukken groter dan 1 MPa, of
- 25 ▪ een drukverschil dat groter is dan 0,2 MPa.

Met een verschil in samenstelling wordt bedoeld dat het gehalte aan minstens één van de componenten meer dan 4% absoluut verschilt.

- 30 Een voorbeeld van een verschil in de aard of type van de gebruikte apparaten is bijvoorbeeld het gebruik van een gepakt bed in plaats van een gefluidiseerd bed.

- Een voorbeeld van twee verschillende processen zijn: het reeds eerder genoemde Stamicarbon lage druk proces, en het Melamine Chemicals hoge druk proces als beschreven in 'Melamine and Guanamines', par. 4.1.3 resp. 4.2.1 van Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Sixth Edition, 2001. Echter, ook twee
35 lage druk processen zoals het Stamicarbon proces en het BASF proces (par. 4.1.1) zijn

verschillend volgens bovengenoemde definitie. Tevens kunnen twee hoge druk processen zoals het Melamine Chemicals proces en het Nissan proces (par. 4.2.3) verschillend zijn volgens de hierboven gegeven definitie. Tenslotte kunnen ook twee processen die beide volgens eenzelfde basisprincipe functioneren, bijvoorbeeld twee

5 Stamicarbon processen, verschillend zijn zoals bijvoorbeeld wanneer het ene proces bij een reactordruk van 0,5 MPa opereert en het andere bij 1 MPa.

Tijdens de eerste mengstap volgens de uitvinding wordt een mengsel gevormd. Het mengsel kan vervolgens op daarvoor bekende wijze verder worden behandeld om de melamine af te scheiden, afhankelijk van de aard van het mengsel.

10 In een uitvoeringsvorm van de uitvinding bevat ten minste één melamine-bevattende stroom gasvormige en/of vloeibare melamine en omvat de werkwijze volgens de uitvinding tijdens of na de eerste mengstap een koelstap, waarin het mengsel wordt gekoeld tot een temperatuur beneden 250°C. Hierbij wordt vaste melamine gevormd.

15 In deze uitvoeringsvorm bevat ten minste één melamine-bevattende stroom gasvormige en/of vloeibare melamine, waarbij de stroom tevens andere verbindingen zoals bijvoorbeeld NH_3 en CO_2 kan bevatten; voorbeelden van een dergelijke stroom zijn: het reactor-effluent in een gasfase proces voor de bereiding van melamine; het vloeibare reactor-effluent in een hogedruk niet-katalytisch proces voor

20 de bereiding van melamine; een vloeibare of gasvormige stroom melamine verkregen door verhitting van reeds eerder bereid melaminepoeder.

In de koelstap wordt het mengsel gekoeld tot beneden 250°C. Het koelen kan middels op zich bekende wijze worden uitgevoerd; hierbij is het ook mogelijk dat de melamine in één van de melamine-houdende stromen zelf als

25 koelmiddel dient, bijvoorbeeld door het als een poederstroom toe te voeren en in contact te brengen met de ten minste één melamine-bevattende stroom welke gasvormige en/of vloeibare melamine bevat. Bij voorkeur wordt de koelstap uitgevoerd door het mengsel in contact te brengen met een waterige fase. Dit heeft als voordeel dat een deel van verontreinigingen, welke in de melamine-bevattende stroom aanwezig

30 kunnen zijn, in de waterige fase zal oplossen. In een uitvoeringsvorm bevat ten minste één melamine-bevattende stroom water als continue fase, en wordt de koelstap tijdens de mengstap uitgevoerd door de ten minste één melamine-bevattende stroom welke gasvormige en/of vloeibare melamine bevat in contact te brengen met de ten minste één melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat. Een voorbeeld

35 van deze uitvoeringsvorm is het in een kolom in contact brengen van een

melaminesmelt uit een hogedrukproces met gasvormige melamine uit een lagedrukproces, waarbij de koelstap in dezelfde kolom wordt uitgevoerd middels een waterige fase. In een andere uitvoeringsvorm wordt een melaminehoudende waterige stroom, afkomstig uit de koelstap van een gasfaseproces, gebruikt voor de koelstap van een melaminesmelt uit een hogedrukproces.

Bij voorkeur wordt de koelstap uitgevoerd door het mengsel in contact te brengen met gasvormige en/of vloeibare ammoniak. Dit heeft als voordeel dat direct een watervrij melamineproduct verkregen kan worden, indien er geen water in de melamine-bevattende stromen aanwezig was.

10 Bij voorkeur bevat ten minste één melamine-bevattende stroom melamine uit een lagedruk gasfaseproces voor de bereiding van melamine, en ten minste één melamine-bevattende stroom melamine uit een hogedruk vloeistoffaseproces voor de bereiding van melamine. Hierdoor kan gebruik gemaakt worden van verschillen in eigenschappen die aanwezig zijn tussen de melamines.

15 Voorbeelden van dergelijke eigenschappen zijn chemische samenstelling, kleur, kristalstructuur, deeltjesgrootte en overige eigenschappen. Een voorbeeld van deze voorkeursuitvoering is het versproeien van melaminesmelt uit een hogedrukproces in een quenchvat, waarin tevens een gasvormige melamine-bevattende stroom uit een lagedrukproces wordt toegevoerd en waarin vloeibare ammoniak wordt versproeid als

20 koelmiddel en waarbij de ammoniak volledig verdampt.

Een verdere uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de uitvinding omvat tijdens of na de eerste mengstap een tweede mengstap waarin het mengsel met een waterige fase in contact wordt gebracht, gevolgd door een kristallisatiestap, waarin het mengsel met ten minste 5°C wordt gekoeld, waarbij vaste melamine wordt

25 gevormd, gevolgd door een afscheidingsstap, waarin de vaste melamine wordt geïsoleerd uit het mengsel. Tijdens de tweede mengstap wordt het mengsel met een waterige fase in contact gebracht. Een voorbeeld hiervan is het mengen van vaste melamine afkomstig van een hogedrukproces met vaste melamine afkomstig uit een lagedrukproces, waarbij een waterige fase wordt toegevoegd. Dit heeft als voordeel,

30 dat een deel van de verontreinigingen in het water oplost en hierdoor het kristallisatiegedrag van het mengsel zal beïnvloeden. De waterige fase bestaat in hoofdzaak uit water maar kan daarnaast ook andere verbindingen bevatten. Voorbeelden van andere verbindingen zijn melamine, bijproducten van melamine, ammoniak, of verbindingen die gebruikt worden om de pH aan te passen zoals zuren

35 of basen. Als gevolg van het in contact brengen van het mengsel met de waterige fase

zal een deel van de melamine in oplossing gaan. Bij voorkeur gaat ten minste 30 gew.% van de melamine in oplossing, met meer voorkeur ten minste 50 gew.%. De temperatuur van het mengsel bedraagt tussen de 50 en 250°C, bij voorkeur tussen de 80 en 200°C. De druk van het mengsel is gelegen tussen de autogene druk van het
5 mengsel bij de bijbehorende temperatuur en 20 MPa, bij voorkeur tussen 0,1 MPa en 10 MPa. In een uitvoeringsvorm wordt de overdruk boven de autogene druk gerealiseerd met ammoniak. Nadat het mengsel in contact is gebracht met de waterige fase, wordt een kristallisatiestap uitgevoerd. Hierin wordt het mengsel, waarmee in deze stap het geheel van het oorspronkelijke mengsel en de waterige fase wordt
10 bedoeld, met ten minste 5°C gekoeld, waarbij eventueel de druk wordt verlaagd. Het koelen kan met behulp van op zich bekende wijzen worden uitgevoerd, zoals bijvoorbeeld middels een warmtewisselaar of door verdamping van een deel van het water onder verlaagde druk. Bij voorkeur wordt het mengsel met ten minste 20°C gekoeld, met meer voorkeur met ten minste 30°C. Doordat de oplosbaarheid van
15 melamine in water daalt bij dalende temperatuur, zal door het koelen van het mengsel vaste melamine ontstaan. De vaste melamine die na de kristallisatiestap in het mengsel aanwezig is, is ten minste gedeeltelijk gevormd tijdens de kristallisatiestap, maar kan ook gedeeltelijk vaste melamine zijn die niet in oplossing is gegaan. Na de kristallisatiestap wordt een afscheidingsstap uitgevoerd, waarin de vaste melamine
20 wordt geïsoleerd uit het mengsel. De afscheidingsstap kan middels op zich bekende wijzen worden uitgevoerd, zoals bijvoorbeeld middels een centrifuge, bandfilter, filterschijf, of filterkaars.

In een uitvoeringsvorm wordt tijdens of na de tweede mengstap en voorafgaand aan de kristallisatiestap in een oplosstap nagenoeg alle melamine
25 opgelost met behulp van verhitting en/of het toevoegen van een waterige stroom. Het voordeel hiervan is, dat maximale beïnvloeding van de kristallisatie middels de opgeloste verontreinigingen kan plaatsvinden.

In nog een andere uitvoeringsvorm van de werkwijze volgens de uitvinding bevat ten minste één melamine-bevattende stroom water als continue fase
30 en wordt op het mengsel na de eerste mengstap een kristallisatiestap toegepast, waarin het mengsel met ten minste 5°C wordt gekoeld, waarbij vaste melamine wordt gevormd, gevolgd door een afscheidingsstap, waarin de vaste melamine wordt geïsoleerd uit het mengsel. Een voorbeeld hiervan is het mengen van een melamine-oplossing uit een gasfaseproces met vaste melamine uit een vloeistoffaseproces.

In deze uitvoeringsvorm kan het voordelig zijn om tijdens of na de eerste mengstap nog een waterige fase toe te voeren aan het mengsel, bijvoorbeeld indien het gewenst is om een groter deel van de melamine in het mengsel in oplossing te brengen.

5 In een uitvoeringsvorm bevat de melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat melamine uit een lagedruk gasfaseproces en is tussen 70% en 110% met melamine verzadigd. De melamine-verzadiging van een waterige stroom wordt gedefinieerd als de melamineconcentratie in de stroom gedeeld door de maximale melamineconcentratie bij thermodynamisch evenwicht (bij de gegeven
10 procescondities) maal 100%. Een verzadiging van meer dan 100% is thermodynamisch instabiel, maar kan zoals bekend gedurende een korte tijd bestaan voordat de verschuiving naar een 100% verzadiging wordt ingezet. Het voordeel van deze uitvoeringsvorm is, dat enerzijds de vorm en deeltjesgrootte van de niet opgeloste melaminekristallen en anderszijds de verontreinigingen van de opgeloste melamine de
15 eigenschappen van het eindproduct bepalen. Door variaties in bovenstaande parameters aan te brengen kan een brede range aan producteigenschappen gecreëerd worden.

Ook wanneer de kristallisatiestap tijdens of na de mengstap wordt uitgevoerd, bevat bij voorkeur ten minste één melamine-bevattende stroom melamine
20 uit een lagedruk gasfaseproces voor de bereiding van melamine en ten minste één melamine-bevattende stroom melamine uit een hogedruk vloeistoffaseproces voor de bereiding van melamine.

Bij voorkeur wordt in de werkwijze volgens de uitvinding na de oplosstap en voorafgaand aan de kristallisatiestap een zuiveringsstap op het mengsel
25 toegepast, omvattende:

- een behandeling met NH_3 bij een druk gelegen tussen 1 MPa en 20 MPa en temperatuur tussen 100 en 250°C, met meer voorkeur bij een druk gelegen tussen 2 MPa en 10 MPa en een temperatuur tussen 120 en 200°C, en
- optioneel een adsorptie- en/of filtratiestap.

30 De genoemde behandelingen met NH_3 , de adsorptiestap, bijvoorbeeld met actieve kool, en de filtratiestap, kunnen met behulp van op zich bekende wijze worden uitgevoerd. Het voordeel van deze uitvoeringsvorm is, dat de hoeveelheid verontreinigingen die de kristallisatie beïnvloeden gestuurd kunnen worden.

Bij voorkeur wordt het mengsel in de kristallisatiestap gekoeld tot een temperatuur gelegen tussen 100°C en 25°C, met meer voorkeur tot een temperatuur gelegen tussen 80°C en 40°C.

5 De melamine volgens de uitvinding verkregen kan worden gebruikt voor de bereiding van amino-aldehyde harsen zoals melamine-formaldehyde hars of melamine-ureum-formaldehyde hars. De uitvinding heeft daarom ook betrekking op dergelijke harsen.

De uitvinding wordt nader toegelicht middels een aantal voorbeelden en een vergelijkend experiment.

10

Voorbeeld I

2 kg/uur van een melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat en welke een temperatuur van 97°C heeft, bevat 4 gew% opgeloste melamine afkomstig van een Stamicarbon gasfaseproces. Genoemde
15 stroom wordt gemengd met 0,4 kg/uur van een melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat, een temperatuur van 97°C heeft, afkomstig is van een hogedruk vloeistoffaseproces en waarin 6 gew% melamine, waarvan een deel als vaste stof, aanwezig is. Het mengsel wordt in een kristallisator afgekoeld tot 60°C, waarbij meer vaste melamine ontstaat. De vaste melamine wordt met filtratie
20 afgescheiden. De afgescheiden vaste melamine heeft een d_{50} van 46 μm en een d_{90} van 98 μm . De parameters d_{50} en d_{90} zijn zoals bekend veelgebruikte indicatoren voor deeltjesgrootte en deeltjesgrootteverdeling; d_{50} en d_{90} zijn gemeten met een laser-diffractie techniek aan het droge poeder in lucht (Sympatec).

25 Voorbeeld II

2 kg/uur van een melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat en welke een temperatuur van 97°C heeft, bevat 4 gew% opgeloste melamine afkomstig van een Stamicarbon gasfaseproces. Genoemde stroom wordt gemengd met 0,4 kg/uur van een melamine-bevattende stroom welke
30 water als continue fase bevat, een temperatuur van 97°C heeft, afkomstig is van een hogedruk vloeistoffaseproces en waarin 4 gew% melamine aanwezig is. Het mengsel wordt in een kristallisator afgekoeld tot 60°C, waarbij vaste melamine ontstaat. De vaste melamine wordt met filtratie afgescheiden. De afgescheiden vaste melamine heeft een d_{50} van 42 μm en een d_{90} van 96 μm .

35

Vergelijkend Experiment

- 2,4 kg/uur van een melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat en welke een temperatuur van 97°C heeft, bevat 4,3 gew% opgeloste melamine afkomstig van een Stamicarbon gasfaseproces. Genoemde
- 5 stroom wordt in een kristallisator afgekoeld tot 60°C, waarbij vaste melamine ontstaat. De vaste melamine wordt met filtratie afgescheiden. De afgescheiden vaste melamine heeft een d_{50} van 87 μm en een d_{90} van 183 μm . De melamine heeft een grotere deeltjesgrootte dan volgens de voorbeelden I en II; de melamine uit het vergelijkend experiment heeft een langere oplostijd tijdens harsbereiding dan de melamine uit
- 10 voorbeelden I en II, hetgeen ongewenst is.

CONCLUSIES

1. Werkwijze voor het bereiden van melamine, gekenmerkt door een eerste mengstap waarin ten minste twee melamine-bevattende stromen, afkomstig uit ten minste twee verschillende processen voor de bereiding van melamine, met elkaar in contact gebracht worden, waarbij een mengsel wordt gevormd.
2. Werkwijze volgens conclusie 1, waarin ten minste één melamine-bevattende stroom gasvormige en/of vloeibare melamine bevat, en welke tijdens of na de eerste mengstap een koelstap omvat, waarin het mengsel wordt gekoeld tot een temperatuur beneden 250°C.
3. Werkwijze volgens conclusie 2, waarin de koelstap wordt uitgevoerd door het mengsel in contact te brengen met een waterige fase.
4. Werkwijze volgens conclusie 2, waarin ten minste één melamine-bevattende stroom water als continue fase bevat en waarin de koelstap tijdens de mengstap wordt uitgevoerd door toevoering van de ten minste één melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat.
5. Werkwijze volgens conclusie 2, waarin de koelstap wordt uitgevoerd door het mengsel in contact te brengen met gasvormige en/of vloeibare ammoniak.
6. Werkwijze volgens een der conclusies 1 - 5, waarin ten minste één melamine-bevattende stroom melamine bevat uit een lagedruk gasfaseproces voor de bereiding van melamine en ten minste één melamine-bevattende stroom melamine bevat uit een hogedruk vloeistoffaseproces voor de bereiding van melamine.
7. Werkwijze volgens conclusie 1, omvattende tijdens of na de eerste mengstap een tweede mengstap waarin het mengsel met een waterige fase in contact wordt gebracht, gevolgd door een kristallisatiestap, waarin het mengsel met ten minste 5°C wordt gekoeld, waarbij vaste melamine wordt gevormd, gevolgd door een afscheidingsstap, waarin de vaste melamine wordt geïsoleerd uit het mengsel.
8. Werkwijze volgens conclusie 7, waarin tijdens of na de tweede mengstap en voorafgaand aan de kristallisatiestap in een oplosstap nagenoeg alle melamine opgelost wordt met behulp van verhitting en/of het toevoegen van een waterige stroom.
9. Werkwijze volgens conclusie 1, waarbij ten minste één melamine-bevattende stroom water als continue fase bevat, waarin op het mengsel na de eerste

mengstap een kristallisatiestap wordt toegepast, waarin het mengsel met ten minste 5°C wordt gekoeld, waarbij vaste melamine wordt gevormd, gevolgd door een afscheidingsstap, waarin de vaste melamine wordt geïsoleerd uit het mengsel.

- 5 10. Werkwijze volgens conclusie 9, waarin de melamine-bevattende stroom welke water als continue fase bevat melamine bevat afkomstig uit een lagedruk gasfaseproces en tussen 70% en 110% met melamine verzadigd is.
11. Werkwijze volgens een der conclusies 7 – 10, waarin ten minste één melamine-bevattende stroom melamine bevat uit een lagedruk gasfaseproces
- 10 voor de bereiding van melamine en ten minste één melamine-bevattende stroom melamine bevat uit een hogedruk vloeistoffaseproces voor de bereiding van melamine.
12. Werkwijze volgens conclusie 8, waarin na de oplosstap en voorafgaand aan de kristallisatiestap een zuiveringsstap op het mengsel wordt toegepast,
- 15 omvattende
- een behandeling met NH_3 bij een druk gelegen tussen 1 MPa en 20 MPa en temperatuur tussen 100°C en 250°C, en
 - optioneel een adsorptiestap en/of een filtratiestap.
13. Werkwijze volgens een der conclusies 7 - 12, waarin het mengsel in de
- 20 kristallisatiestap wordt gekoeld tot een temperatuur gelegen tussen 100°C en 25°C.
14. Amino-aldehyde hars, bereid met melamine verkregen volgens een der conclusies 1 – 13.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/NL 03/00546

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D251/60

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 99 38852 A (AGROLINZ MELAMIN GMBH ;COUFAL GERHARD (AT)) 5 August 1999 (1999-08-05) claim 1 -----	1-14

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 October 2003

Date of mailing of the international search report

30/10/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

De Jong, B

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/NL 03/00546

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9938852	A	05-08-1999	AT 247093 T	15-08-2003
			AU 748135 B2	30-05-2002
			AU 2718099 A	16-08-1999
			BG 104582 A	30-03-2001
			BR 9908145 A	28-11-2000
			CA 2319091 A1	05-08-1999
			CN 1289328 T	28-03-2001
			DE 59906590 D1	18-09-2003
			EG 21732 A	27-02-2002
			WO 9938852 A1	05-08-1999
			EP 1051409 A1	15-11-2000
			HR 20000506 A1	31-12-2000
			HU 0101240 A2	28-08-2001
			JP 2002501911 T	22-01-2002
			NO 20003524 A	07-07-2000
			PL 342057 A1	21-05-2001
			SK 9722000 A3	12-03-2001
			TR 200002211 T2	21-12-2000
			TW 422829 B	21-02-2001
			US 2001005751 A1	28-06-2001
			ZA 9900725 A	29-07-1999